



⑪ Veröffentlichungsnummer : **0 413 279 B1**

US 5,186,720

⑫

EUROPÄISCHE PATENTSCHRIFT

④⑤ Veröffentlichungstag der Patentschrift :
23.12.92 Patentblatt 92/52

⑤① Int. Cl.⁵ : **C10L 1/22, C10L 1/14**

②① Anmeldenummer : **90115457.5**

②② Anmeldetag : **11.08.90**

⑤④ **Verwendung von Umsetzungsprodukten von Alkenylspirobisactonen und Aminen als Paraffindispersatoren.**

③③ Priorität : **16.08.89 DE 3926992**

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung :
20.02.91 Patentblatt 91/08

④⑤ Bekanntmachung des Hinweises auf die
Patenterteilung :
23.12.92 Patentblatt 92/52

⑧④ Benannte Vertragsstaaten :
DE GB NL SE

⑤⑥ Entgegenhaltungen :
EP-A- 0 263 703

⑤⑥ Entgegenhaltungen :

GB-A- 2 201 678

US-A- 3 062 631

US-A- 4 081 456

US-A- 4 396 399

US-A- 4 532 058

⑦③ Patentinhaber : **HOECHST
AKTIENGESELLSCHAFT
Postfach 80 03 20
W-6230 Frankfurt am Main 80 (DE)**

⑦② Erfinder : **Feustel, Michael, Dr.
Freiherr-vom-Stein Strasse 35
W-6233 Kelkheim (Taunus) (DE)
Erfinder : Ritschel, Werner, Dr.
Verstorben (DE)**

EP 0 413 279 B1

Anmerkung : Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann b im Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99(1) Europäisches Patentübereinkommen).

B s chr ibung

Verwendung von Umsetzungsprodukten von Alkenyl-spirobislaetonen und Aminen als Paraffindispersatoren

5 Mineralöl-Mitteldestillate verschiedener Provenienz weisen in der Regel recht unterschiedliche Gehalte an n-Paraffinen auf. Im Dieselmotorkraftstoff sind langkettige Paraffine (C_{11} - C_{33}) einerseits von Vorteil, da sie zur Verbesserung der Cetan-Zahl beitragen, andererseits aber von Nachteil, da sie die Fluidität des Brennstoffs bei absinkender Temperatur einschränken.

10 Diese Verringerung der Fließfähigkeit beruht auf der Kristallisation der Paraffine zu plattenförmigen Kristallen sowie dem Aufbau einer dreidimensionalen Netzstruktur (Gelstruktur). Bei Betrieb von Dieselmotoren oder Heizungsanlagen bei niedrigen Temperaturen gehen diese Kristalle im allgemeinen nicht durch die jeweiligen Filter-Aggregate und führen daher früher oder später zu einer Blockierung des Brennstoffdurchflusses. Dies kann sich in Schwierigkeiten beim Starten oder Anlassen des Dieselmotors bemerkbar machen oder zu einem Ausfall des Vorwärmesystems für den Brennstoff führen.

15 Es ist bekannt, daß zahlreiche Additive zur Verbesserung des Kaltfließverhaltens bzw. der Filterbarkeit fähig sind. So wird in US-A 3 961 916 die Verwendung einer Mischung von Mischpolymeren beschrieben, um die Größe der Paraffinkristalle zu steuern und gemäß GB-A 1 263 152 soll die Größe der Paraffinkristalle durch Verwendung eines Mischpolymers mit einer geringen Kettenverzweigung kontrolliert werden. Ferner beschreibt die US-A 3 048 479 die Verwendung von Copolymeren aus Ethylen und C_1 - C_5 -Vinylestern (z.B. Vinylacetat) als Fließverbesserer für Brennstoffe wie Diesel und Heizöl.

20 Die Verbesserung des Kaltfließverhaltens, die durch den Einbau (Cokristallisation) dieser bekannten Additive während des Paraffinkristallwachstums erreicht wird, beruht auf einer Modifizierung der Größe und Form der gebildeten Paraffinkristalle, die dann nicht mehr die Poren der Filter verstopfen, sondern einen porösen Filterkuchen bilden und einen mehr oder weniger ungehinderten Durchtritt der übrigen flüssigen Bestandteile gestatten.

25 Die meisten dieser Fließverbesserer sind nun allerdings nicht in der Lage, die Sedimentation der einmal gebildeten Paraffinkristalle zu unterbinden. Die Paraffinkristalle besitzen eine geringfügig höhere Dichte als der sie umgebende Brennstoff selbst und sedimentieren daher in der Regel nach dem Gesetz von Stokes. Da die Tendenz zur Sedimentation auch von der Kristallgröße und von der Kristallform abhängt, sollte eine Reduzierung der Kristallgröße in den kolloidalen Bereich das Sedimentationsbestreben der Paraffinkristalle deutlich verlangsamen.

30 Genau dieses Prinzip wird in einer Reihe von Patentschriften jüngerer Datums verfolgt. So beschreiben die EP-A-0 203 812, 0 272 889 Substanzen mit einer "Wax antissettling"-Wirkung, d.h. die einmal gebildeten Paraffinkristalle sollen danach homogen im Mitteldestillat verteilt bleiben und nicht sedimentieren.

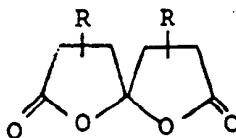
35 Bei der Art von Produkten handelt es sich meist um Mehrkomponenten-Mischungen bestehend z.B. aus Talgfettamin-Phthalsäureanhydrid-Reaktionsprodukten, Alkyldiphenylethern, Alkyl-naphthalinen und geringen Anteilen eines Fließverbesserers. In den D-OS 3 634 082, 3 634 083 sowie in EP-A-0 261 959 wird auch die Verwendung von Reaktionsprodukten des Anhydrids der Orthosulfobenzoessäure mit Alkylaminen als Paraffindispersator beschrieben.

40 Praxisorientierte Versuche haben aber gezeigt, daß die beschriebenen Komponenten zwar bei vielen Mitteldestillaten hinreichende Wirkung zeigen, bei einigen Dieselmotoren hingegen versagen.

Es besteht somit nach wie vor ein Bedarf an gut wirksamen Paraffindispersatoren für Mitteldestillate mit möglichst großer Breitenwirkung.

45 Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß bestimmte Umsetzungsprodukte von Alkenyl-spirobislaetonen mit bestimmten Aminen hervorragende Wirkung als Paraffindispersatoren bei vielen Mitteldestillaten zeigen, auch bei Temperaturen unter -20°C .

Gegenstand der Erfindung ist somit die Verwendung von Umsetzungsprodukten von Alkenyl-spirobislaetonen der Formel



55 wobei R jeweils C_8 - C_{200} -, vorzugsweise C_{10} - C_{20} -Alkenyl bedeuten, mit Aminen der Formel $NR^1R^2R^3$

wobei R^1 , R^2 und R^3 gleich oder verschieden sein können und mindestens eine dieser Gruppen R^1 , R^2 oder

R^3 C₈-C₃₆-Alkyl, C₈-C₃₆-Alkenyl oder Cyclohexyl und die übrigen Gruppen Wasserstoff oder eine Gruppe der Formel $-(A-O)_xH$ oder $-(CH_2)_n-NYZ$, A = $-C_2H_4-$ und/oder $-C_3H_6-$, x eine Zahl von 1 bis 20, n 2 oder 3 und Y und Z gleich oder verschieden sein können und Wasserstoff oder eine Gruppe der Formel $-(A-O)_xH$ bedeuten, als Paraffindispersatoren in Mitteldestillaten und Erdöl.

Die als Ausgangsverbindungen dienenden Alkenylspirobis lactone werden nach dem in US-A 4 532 058 beschriebenen Verfahren hergestellt durch Decarboxylierung von Alkenylbernsteinsäureanhydriden in Gegenwart von Basen.

Diese Alkenylspirobis lactone werden mit den Aminen der angegebenen Formel umgesetzt zu den erfindungsgemäß zu verwendenden Produkten. Die Umsetzung kann wahlweise in Abwesenheit eines Lösemittels oder in Gegenwart eines inerten, unpolaren, organischen Lösemittels vorgenommen werden.

Bei der Umsetzung mit den Alkenylspirobis lactonen kann entweder ein bestimmtes Amin mit den vorgenannten Resten verwendet werden, es können aber auch Mischungen verschiedener Amine gleichzeitig eingesetzt werden. Das Molverhältnis Alkenylspirobis lacton: Aminen liegt im Bereich von 1 : 1 bis 1 : 2,5, bevorzugt 1 : 2, die Reaktionstemperaturen betragen 60-200 °C, bevorzugt 80 - 120 °C.

Die vorbeschriebenen Umsetzungsprodukte eignen sich als Paraffindispersatoren vorzugsweise in Mitteldestillaten wie Dieseldieselkraftstoffen oder Motorenölen, aber auch in Rohölen. Sie werden üblicherweise in Mengen von 150 bis 500 ppm eingesetzt. Bevorzugt werden diese Paraffindispersatoren nicht allein dosiert, sondern mit üblichen, bekannten Fließverbesserern, beispielsweise Ethylen-Vinylacetat-Copolymeren, kombiniert. Die Einsatzmengen derartiger Fließverbesserer liegen üblicherweise bei 50 bis 600, vorzugsweise 300 ppm.

Allgemeine Angaben zur Herstellung von Alkenylspirobis lactonen

2 Mol eines Alkenylbernsteinsäureanhydrids werden in Gegenwart von 0,5 Gew.-% KF 6 Stunden auf 220-230 °C erhitzt, wobei CO₂ entweicht. Man erhält 1 Mol des Alkenylspirobis lactons.

Beispiel 1

Umsetzung von Dodecylspirobis lacton mit Talgfettamin und Ditalgfettamin

488 g (1 Mol) Dodecylspirobis lacton wird mit einer Mischung aus 260 g (1 Mol) Talgfettamin und 495 g (1 Mol) Ditalgfettamin 2 Stunden bei 80 °C gerührt. Dann gibt man 840 g Shellsol AB (aromatisches Kohlenwasserstoff-Gemisch) zu, rührt 20 min. und füllt ab. Man erhält ca. 2080 g eines braunen Öles mit einem Wirkstoffgehalt von 60 %.

Beispiel 2

Umsetzung von Tetradecylspirobis lacton mit Talgfettalkyldihydroxyethylamin und Ditalgfettamin

544 g (1 Mol) Tetradecylspirobis lacton wird zunächst mit 360 g (1 Mol) Talgfettalkyldihydroxyethylamin 1 Stunde bei 120 °C umgesetzt, darauf werden 495 g (1 Mol) Ditalgfettamin zugegeben und weitere 2 Stunden bei 80 °C gerührt. Anschließend gibt man 930 g Shellsol AB zu, rührt 20 min. und füllt ab. Man erhält ca. 2330 g braunes Öl mit einem Aktivgehalt von 60 %.

Beispiel 3

Umsetzung von Polyisobutenylspirobis lacton mit Talgfettpropylendiamin und Dicyclohexylamin

756 g (1 Mol) Polyisobutenylspirobis lacton ($R = C_{20}H_{39}-C_{24}H_{47}$) (welches hergestellt wurde durch Decarboxylierung von 2 Mol Polyisobutenylbernsteinsäureanhydrid mit einem mittleren Molgewicht von 400) wird mit einer Mischung aus 518 g (1,5 Mol) Talgfettpropylendiamin und 363 g (0,5 Mol) Dicyclohexylamin 2 Stunden bei 100 °C gerührt. Dann gibt man 1090 g Shellsol AB zu, rührt 20 min. nach und füllt ab. Man erhält ca. 2700 g braunes Öl mit einem Gehalt an 60 % Wirkstoff.

Anwendungstechnischer Teil

Im Gegensatz zur Bestimmung des Grenzwertes der Filtrierbarkeit (CFPP, IP 309/DIN 51 428) gibt es bislang kein analog genormtes Testverfahren zur Prüfung der Paraffindispersierwirkung.

Neben einer rein optischen Beurteilung des Sedimentationsgrads werden mikroskopische Untersuchungen der Kristallgröße sowie die Anwendung analytischer Methoden (DSC etc.) genutzt.

Da die Sedimentationsgeschwindigkeit als Funktion der Kristallgröße gesehen werden kann und diese wiederum von der Abkühlgeschwindigkeit beeinflusst wird, scheidet der CFPP-Test als Kriterium zur Wirksamkeitsprüfung eines Paraffindispersors aus, da eine zu rasche Abkühlung der Ölprobe erfolgt.

Bekanntlich führt eine rasche Abkühlung zu einer Vielzahl kleiner Paraffinkristalle, wohingegen bei langsamer Abkühlrate die Anzahl der gebildeten Paraffinkristalle erheblich niedriger liegt und somit - bei gleicher Paraffinmenge - die Kristalle deutlich größer sind.

Es wurde versucht, diesem Umstand mit dem im folgenden beschriebenen Labortestverfahren Rechnung zu tragen. Im allgemeinen sind drei Parameter für das Sedimentationsverhalten der Paraffinkristalle von Bedeutung:

- Kristallgröße/-form
- Temperatur
- Zeit

Nach umfangreichen Vorversuchen wurde gefunden, daß die Dispergierwirkung verschiedener Additive sich in einem 72-stündigem Kälteversuch (Temperaturverlauf siehe Figur 1) anschaulich und mit gut reproduzierbaren Ergebnissen vergleichen läßt. Alle Kälteversuche wurden in einem programmierbaren Kälteschrank der Fa. Heraeus-Vötsch durchgeführt.

Kälteversuch-Kennzahlen

Dauer: 72 Stunden

Temperaturen

Anfang: + 20 °C
 nach 24 Std.: - 13 °C
 v. 24-72 Std.: - 13 bis - 20 °C
 Ende: - 13 °C
 Kühlrate: 1-2 °C/Std.
 Probenvolumen: 100 ml

Nach Beendigung des Kälteversuchs schließt sich im ersten Schritt eine optische (visuelle) Beurteilung des Ölmusters an. Die Paraffinsedimentation wird dabei in bekannter Weise visuell durch Bestimmung des sog. WDI (Wax Dispersion Index) charakterisiert.

$$WDI = \frac{V_{sed}}{V_{ges}} \times 100$$

V_{sed} = Volumen des sedimentierten Anteils der Probe,
 V_{ges} = Volumen der gesamten Probe.

Eine optimale Paraffindispersierung, erkennbar an einem homogen trüben Ölmuster, ist bei einem WDI 100 gegeben. Werte unterhalb 100 deuten auf Paraffinsedimentation hin bei gleichzeitigem Aufklaren (erhöhte Transparenz) der Ölprobe. Unterstrichene WDI-Werte kennzeichnen partielle Wachssedimentation; hierbei zeigt ein kleiner Meßwert ein günstiges Verhalten an.

Die optische Charakterisierung des Dispergiervhaltens wird gefolgt von einer Zweiteilung des Probenmusters (Vol.: 100 ml). Dazu entnimmt man (Temp.: -13 °C) vorsichtig mittels einer Pipette 50 ml der Ölprobe. Die Pipette wird dabei kurz unterhalb der Oberfläche eingetaucht und bei abnehmendem Probenvolumen von oben nach unten nachgeführt. Sowohl die entnommene 50 ml-Probe als auch die verbleibenden 50 ml-Bodenphase werden anschließend hinsichtlich Cloud Point (CP) und CFPP vermessen. Erwartungsgemäß zeigen dabei annähernd gleich CP-Werte der beiden Phasen eine optimale Dispergierung der Paraffinkristalle (WDI 100) bzw. eine partielle Sedimentation an. Im Falle einer deutlich erkennbaren Paraffinsedimentation (WDI unter 100) ergeben sich mitunter CP-Differenzen von mehr als 10 °C (vgl. Beispiele); ferner wird deutlich, daß die CFPP-Ergebnisse den Unterschied zwischen guter und schlechter Dispergierung bei weitem nicht so eindeutig reflektieren, wie dies für den CP zutrifft.

Die bei verschiedenen Ölen erhaltenen Meßwerte sind in der folgenden Übersicht zusammengestellt.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

<u>TEST-ÖL 1</u>		CP:	- 9,0 °C			
		CFPP:	-15,0 °C			
		IBP:	165,0 °C			
		(90-20) %:	104,0 °C			
		(FBP - 90 %):	33,0 °C			
		FBP:	351,0 °C			
Additiv	Dosierung	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
	ppm		oben	unten	oben	unten
FI 1	300	10	-13,5	-1,5	-27	-20
FI 1/PD A	300/400	100	- 9,0	-8,7	-25	-25
FI 2/PD A	300/400	<u>5</u>	-10,0	-6,0	- 26	-24
<u>TEST-ÖL 2</u>		CP:	- 9,0 °C			
		CFPP:	-15,0 °C			
		IBP:	179,9 °C			
		(90-20) %:	100,0 °C			
		(FBP - 90 %):	28,0 °C			
		FBP:	347,6 °C			
Additiv	Dosierung	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
	ppm		oben	unten	oben	unten
FI 1	300	10	-15,4	-2,4	-28	-19
FI 1/PD A	300/300	100	- 8,3	-8,0	-27	-27
<u>TEST-ÖL 3</u>		CP:	-10,0 °C			
		CFPP:	-11,0 °C			
		IBP:	162,2 °C			
		(90-20) %:	103,0 °C			
		(FBP - 90 %):	37,7 °C			
		FBP:	344,0 °C			
Additiv	Dosierung	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
	ppm		oben	unten	oben	unten
FI 1	200	10	-13,2	-3,5	-32	-20
FI 1/PD A	200/300	<u>2</u>	- 9,8	-9,0	-33	-30

TEST-ÖL 4

CP: - 5,0 °C

CFPP: - 9,0 °C

IBP: 178,3 °C

(90-20) %: 104,6 °C

(FBP - 90 %): 29,0 °C

FBP: 354,0 °C

10

Additiv	Dosierung ppm	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
			oben	unten	oben	unten
FI 1	300	8	-8,0	-2,0	-30	-18
FI 1/PD A	300/400	100	-4,5	-4,3	-28	-28

15

TEST-ÖL 5

CP: - 7,0 °C

CFPP: -10,0 °C

IBP: 164,3 °C

(90-20) %: 112,4 °C

(FBP - 90 %): 35,6 °C

FBP: 352,0 °C

25

Additiv	Dosierung ppm	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
			oben	unten	oben	unten
FI 1	300	10	-12,0	-3,0	-33	-18
FI 1/PD A	300/400	100	- 6,9	-7,1	-30	-29

30

35

TEST-ÖL 6

CP: -12,0 °C

CFPP: -15,0 °C

IBP: 171,4 °C

bereits mit 900 ppm (90-20) %: 112,7 °C

Fließverbesserer (FBP - 90 %): 44,0 °C

additiviert CFPP -20 °C FBP: 359,4 °C

40

45

Additiv	Dosierung ppm	WDI	CP (°C)		CFPP (°C)	
			oben	unten	oben	unten
FI 1	200	10	-16	- 8,0	-35	-20
PD A	400	100	-11	-10,5	-37	-38

50

55

Bei den in den Prüfbeispielen genannten Additiven F 1 und F 2 handelt es sich um Fließverbesserer von Typ Ethylen-Vinylacetat-Copolymer (Dodiflow®3744 bzw. Dodiflow®3905), PD A steht für den Paraffin-Dispergator entsprechend dem obigen Herstellungs-Beispiel 1.

CP: Cloud Point;

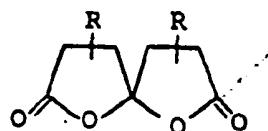
5 CFPP: Cold Filter Plugging Point;

IBP: Initial Boiling Point;

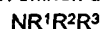
FBP: Final Boiling point

10 Patentansprüche

1. Verfahren zur Verbesserung der Fließfähigkeit von Mitteldestillaten und Rohöl in der Kälte, dadurch gekennzeichnet, daß man den Mitteldestillaten oder dem Rohöl ein Umsetzungsprodukt von Alkenyl-spirobis-lactonen der Formel



wobei R jeweils C₈-C₂₀₀-Alkenyl bedeuten, mit Aminen der Formel



- 25 wobei R¹, R² und R³ gleich oder verschieden sein können und mindestens eine dieser Gruppen R¹, R² oder R³ C₈-C₃₆-Alkyl, C₈-C₃₆-Alkenyl oder Cyclohexyl und die übrigen Gruppen Wasserstoff oder eine Gruppe der Formel -(A-O)_xH oder -(CH₂)_n-NYZ, A=-C₂H₄- und/oder -C₃H₆-, x eine Zahl von 1 bis 20, n 2 oder 3 und Y und Z gleich oder verschieden sein können und Wasserstoff oder eine Gruppe der Formel -(A-O)_xH bedeuten, zusetzt.

- 30 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man die Umsetzungsprodukte in Mengen von 50 bis 600 ppm zusetzt.

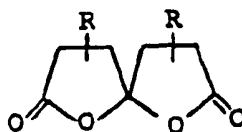
- 35 3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man zusätzlich noch übliche Fließverbesserer zusetzt.

4. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man solche Umsetzungsprodukte zusetzt, die durch Umsetzung von Alkenyl-spirobis-lacton und Amin im Verhältnis 1:1 bis 1:2,5 erhalten werden.

- 40 5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man solche Umsetzungsprodukte zusetzt, die durch Umsetzung von Alkenyl-spirobis-lacton und Amin bei 60 bis 200°C erhalten werden.

Claims

- 45 1. A process for improving the flowability of middle distillates and crude oil at low temperatures, which comprises adding to the middle distillates or crude oil a product of the reaction of alkenyl-spirobis-lactones of the formula



50 in which R is in each case C₈-C₂₀₀-alkenyl, with amines of the formula



in which R¹, R² and R³ may be identical or different and at least one of these groups R¹, R² or R³ is C₈-

C₃₆-alkyl, C₈-C₃₆-alkenyl or cyclohexyl and the other groups are hydrogen or a group of the formula $-(A-O)_xH$ or $-(CH_2)_n-NYZ$, A is $-C_2H_4-$ and/or $-C_3H_6-$, x is a number from 1 to 20, n is 2 or 3 and Y and Z may be identical or different and are hydrogen or a group of the formula $-(A-O)_xH$.

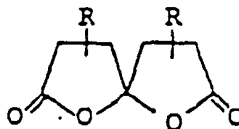
- 5 2. The process as claimed in claim 1, wherein the reaction products are added in amounts of from 50 to 600 ppm.
3. The process as claimed in claim 1, wherein customary flow improvers are additionally added.
- 10 4. The process as claimed in claim 1, wherein the reaction products which are added are those obtained by reacting alkenyl-spirobis lactone and amine in the ratio of 1:1 to 1:2.5.
5. The process as claimed in claim 1, wherein the reaction products which are added are those obtained by reacting alkenyl-spirobis lactone and amine at 60 to 200°C.

15

Revendications

1. Procédé pour améliorer la fluidité (aptitude à l'écoulement) à froid de distillats moyens et de l'huile lourde, procédé caractérisé en ce qu'on ajoute aux distillats moyens ou à l'huile lourde un produit résultant de la réaction d'alcényl-spiro-bis-lactones répondant à la formule :

25



dans laquelle les R représentent chacun un radical alcényle contenant de 8 à 200 atomes de carbone, avec des amines répondant à la formule :

30



dans laquelle au moins un des symboles R¹, R² et R³, qui peuvent avoir la même signification ou des significations différentes, représente un alkyle en C₈-C₃₆, un alcényle en C₈-C₃₆ ou un cyclohexyle et les autres représentent l'hydrogène ou un radical de formule $-(A-O)_xH$ ou de formule $-(CH_2)_n-NYZ$, le symbole A représentant $-C_2H_4-$ et/ou $-C_3H_6-$, x désignant un nombre de 1 à 20, n étant égal à 2 ou à 3, Y et Z représentant chacun, indépendamment l'un de l'autre, l'hydrogène ou un radical de formule $-(A-O)_xH$.

35

2. Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce que les produits réactionnels sont ajoutés en des quantités comprises entre 50 et 600 ppm.
- 40 3. Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce qu'on ajoute, en plus, des améliorateurs d'écoulement usuels.
4. Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce qu'on ajoute des produits de réaction que l'on a obtenus en faisant réagir l'alcényl-spiro-bis-lactone et l'amine dans un rapport compris entre 1:1 et 1:2,5.
- 45 5. Procédé selon la revendication 1 caractérisé en ce qu'on ajoute des produits de réaction que l'on a obtenus en faisant réagir l'alcényl-spiro-bis-lactone et l'amine à une température comprise entre 60 et 200°C.

50

55

FIG. 1

